УДК 539.534.9

РЕЗОНАНСНОЕ ТУННЕЛИРОВАНИЕ ЭЛЕКТРОНОВ ЧЕРЕЗ НАНОКЛАСТЕРЫ, СФОРМИРОВАННЫЕ В СТАБИЛИЗИРОВАННОМ ДИОКСИДЕ ЦИРКОНИЯ МЕТОДОМ ИОННОЙ ИМПЛАНТАЦИИ

© 2007 г.

Д.А. Антонов, Г.А. Вугальтер, О.Н. Горшков, А.П. Касаткин, Д.О. Филатов, М.Е. Шенина

Нижегородский госуниверситет им. Н.И. Лобачевского

vestnik_nngu@mail.ru

Поступила в редакцию 5.04.2007

Исследованы структуры, содержащие нанокластеры, сформированные в стабилизированном диоксиде циркония методом ионной имплантации. Измерены вольт-амперные характеристики таких структур. На некоторых из них обнаружены максимумы, которые можно объяснить резонансным туннелированием электронов с учетом зависимости прозрачности диэлектрических барьеров от энергии электрона и напряжения на структуре.

Введение

В последние годы всесторонне исследуются фундаментальные свойства металлических нанокластеров в различных матрицах в связи с тем, что такие наноструктурированные материалы могут быть использованы для создания одноэлектронных устройств [1–3]. В работах [4–6] при анализе оптических спектров пропускания стабилизированного диоксида циркония, облученного ионами водорода [6] и гелия [4, 5], было показано, что выход ионов кислорода из материала в процессе облучения приводит к образованию в нем нановключений циркония. Такой механизм образования нановключений согласовывался с тем, что наблюдаемый эффект зависел как от величины, так и от направления электрического поля, приложенного к образцу в процессе облучения [7]. Облучение этого материала ионами циркония также приводит к образованию в нем нановключений циркония [8].

Измерения показали, что вольт-амперные характеристики таких структур разнообразны [9]. Наблюдались вольт-амперные характеристики и со ступенями, и с резонансными максимумами, и без особенностей. Одна из вольт-амперных характеристик с максимумом приведена на рис. 1. При малых размерах кластеров (диаметр порядка 1 нм) на электронном транспорте могут сказываться как кулоновская блокада туннелирования, так и резонансное туннелирование электронов через дискретные уровни. Как показано в работе [10], учет кулоновской блокады объясняет ступенчатую структуру характеристики. Максимумы на вольт-амперной характеристике могут быть объяснены лишь с привлечением теории резонансного туннелирования (см., например, [3], глава 4). Для объяснения особенностей вольт-амперных характеристик приходится привлекать различные модели, учитывающие, например туннелирование через два близко расположенных кластера, наличие в диэлектрических барьерах глубоких энергетических уровней [11], взаимодействие туннелирующих электронов с фононами и т.д. Рассмотрим вольт-амперные характеристики с максимумами, которые можно объяснить резонансным туннелированием электронов. При описании резонансного туннелирования

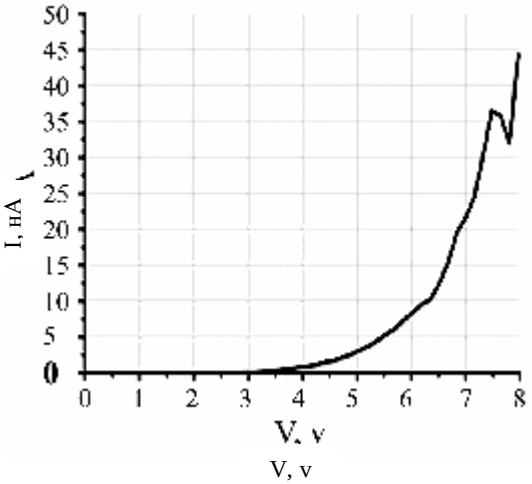


Рис. 1. Вольт-амперная характеристика структуры, стабилизированный диоксид циркония с нанокластерами циркония –p^+ Si. Толщина структуры 24 нм. Характеристика измерена в одной из точек структуры

коэффициенты прозрачности диэлектрических барьеров, окружающих кластер, как правило, считаются слабо зависящими от энергии электронов и от напряжения, приложенного к структуре. В этом приближении ширина резонансных пиков – порядка энергии Ферми эмиттера, что значительно превышает ширину резонансных пиков в экспериментах [9]. Чтобы объяснить наблюдавшиеся вольт-амперные характеристики, в работе учитывается зависимость коэффициентов прозрачности барьеров от энергии электронов и от напряжения на структуре.

Как известно, эффект резонансного туннелирования наиболее ярко выражен, когда проницаемости барьеров, окружающих квантовую яму, близки [3]. Напротив, накопление заряда на кластере и, следовательно, кулоновская блокада проявляются, если проницаемость барьера между эмиттером и кластером гораздо больше проницаемости барьера между кластером и коллектором [10]. Следовательно, в условиях, когда существенно резонансное туннелирование, эффектом кулоновской блокады можно пренебречь.

Моделирование вольт-амперной характеристики

Следуя работе [12], считаем, что вольт-амперная характеристика рассматриваемой структуры определяется туннелированием – через один кластер, отделенный диэлектрическими слоями от двух массивов кластеров – через «узкое горло». Расчеты выполним в рамках простейшей модели, в которой кластер рассматривается как одномерная квантовая яма с системой уровней кластера. Энергетическая диаграмма идеализированной структуры с «узким горлом» показана на рис. 2. В качестве эмиттера выступает массив циркониевых кластеров либо электрод из платины, в качестве коллектора – массив циркониевых кластеров либо кремний p+-типа. Полагаем, что напряжение V падает лишь на барьерах: на первом – V_1, на втором – $V_2 = V–V_1$. На рис. 2 показаны лишь два дискретных уровня кластера. Задача о нахождении электронного спектра в кластере сложна, что связано со сложной нерегулярной структурой потенциала в кластере и необходимостью учета электрон-электронного взаимодействия. Поэтому заменим реальный спектр системой равноотстоящих уровней. Расстояние между соседними уровнями (среднее расстояние между соседними уровнями реального спектра) рассматриваем как параметр.

Ток, связанный с прохождением электронов только через уровень E_n в кластере, описывается выражением [3]

$$I_n = \frac{eSm}{2p^2\mathbf{h}^3}\int_0^{m_1}\frac{4|D_1(E)D_2(E)|^2}{(|D_1(E)|^2+|D_2(E)|^2)^2}\times \times\frac{(m_1-E)(\mathbf{h}/t_n)^2dE}{(E-E_n+eV_1)^2+(\mathbf{h}/t_n)^2}. \quad (1)$$

Здесь e, m – модуль заряда электрона и его эффективная масса; S – эффективная площадь сечения кластера; μ_1 – энергия Ферми эмиттера; E – энергия движения электрона в направлении протекания тока, отсчитываемая от дна зоны проводимости эмиттера; τ_n – время релаксации квазистационарного состояния E_n; $D_1(E)$ и $D_2(E)$ – амплитуды прохождения электрона через барьер эмиттер–кластер и барьер кластер–коллектор соответственно. В литературе по резонансному туннелированию множитель

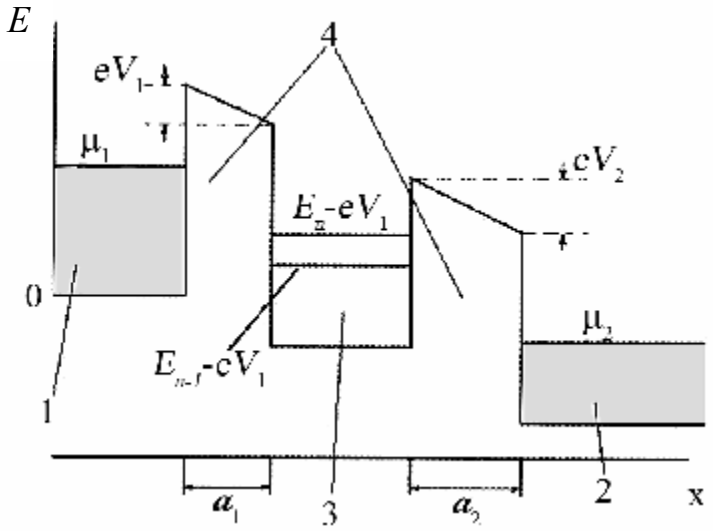


Рис. 2. Энергетическая диаграмма идеализированной структуры с «узким горлом». 1 – эмиттер, 2 – коллектор, 3 – циркониевый кластер, 4 – диэлектрические барьеры. Положительное напряжение V подано на коллектор. Считается, что оно падает только на барьерах. Показаны лишь два уровня размерного квантования в кластере, m_1, m_2 – значения энергии Ферми в эмиттере и коллекторе; a_1, a_2 – толщины барьеров

$4|D_1(E)D_2(E)|^2 / (|D_1(E)|^2 + |D_2(E)|^2)^2$ обычно полагают близким к единице. Чтобы оценить его влияние, мы приняли, что в отсутствие напряжения V эмиттер, коллектор и кластер имеют общее дно зоны проводимости, а высота обоих барьеров U_0. При расчете зависимостей $D_1(E)$ и $D_2(E)$ воспользовались квазиклассическим приближением для волновой функции в области барьеров. При этом оказалось, что

$$D_1(E) = \frac{2k}{k + i\aleph_1} \frac{2i\aleph_2}{k_1 + i\aleph_2} \exp\left(-\frac{2\sqrt{2m}a_1}{3\hbar e V_1} \times \right. \tag{2}$$
$$\left. \times - \left[(U_0 - E)^{3/2} - (U_0 - E - eV_1)^{3/2} \right] \right),$$

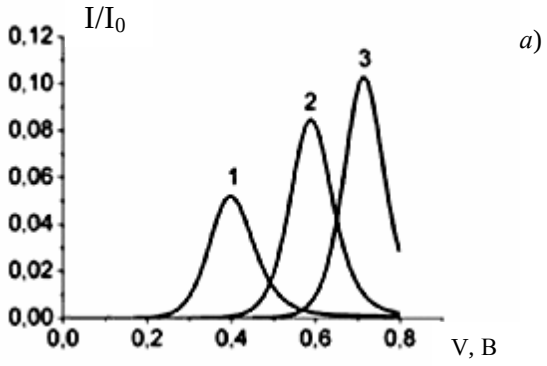
$$D_2(E) = \frac{2k_1}{k_1 + i\aleph_2} \frac{2i\aleph_3}{k_2 + i\aleph_3} \exp\left(-\frac{2\sqrt{2m}a_2}{3\hbar e V_2} \times \right. \tag{3}$$
$$\left. \times - \left[(U_0 - E - eV_1)^{3/2} - (U_0 - E - eV)^{3/2} \right] \right),$$

где

$$k = \sqrt{2mE} / \hbar, k_1 = \sqrt{2m(E + eV_1)} / \hbar,$$
$$k_2 = \sqrt{2m(E + eV)} / \hbar, \aleph_1 = \sqrt{2m(U_0 - E)} / \hbar,$$
$$\aleph_2 = \sqrt{2m(U_0 - E - eV_1)} / \hbar,$$
$$\aleph_3 = \sqrt{2m(U_0 - E - eV)} / \hbar.$$

При численных расчетах полагали, что падение напряжения на каждом из барьеров пропорционально толщине барьера, т.е. $V_1 = Va_1/(a_1 + \ + a_2)$ и $V_2 = Va_2/(a_1 + a_2)$. Формулы (2), (3) применимы при $eV < U_0 \ - m_1$.

Благодаря наличию экспоненциальных множителей в выражениях (2) и (3) высота и ширина резонансного пика сильно зависят от соотношения толщин барьеров и их высоты, причем форма пика может заметно отличаться от треугольной, характерной для модели, в которой коэффициенты прозрачности не зависят от энергии. На рис. За изображены три резонансных пика тока через один и тот же энергетический уровень нанокластера при фиксированном значении толщины барьера эмиттер – кластер и трех разных толщинах барьера кластер – коллектор. Для расчета был взят ближайший уровень над уровнем Ферми со значением энергии E_n=1,01μ_1. На рис. 3б показан тот же резонансный пик при разных высотах барьеров.



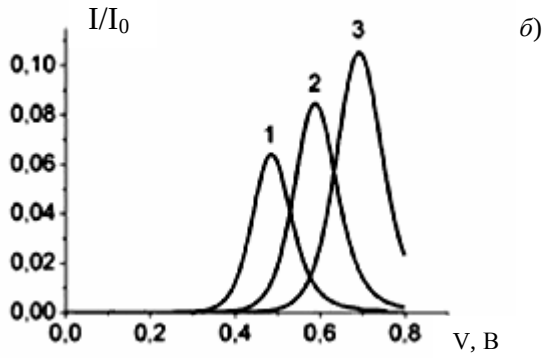


Рис. 3. Туннельный ток через один уровень кластера при трех различных ширинах барьера кластер – коллектор (а) и ток через тот же уровень при трех различных высотах барьеров (б). Уровень Ферми m_1 = = 6,7 эВ; E_n = 1,01m_1 – энергия уровня; $£/t_n$ = = $10^{-3}m_1$; $I_0 = emSm_1/2t_n p£^2$. На рис. а: U_0 = 1,12 – высота барьеров в единицах m_1; a_1 = 9 нм – ширина барьера эмиттер – кластер. a_2 – ширина барьера кластер – коллектор: 1 – a_2 = 10,5 нм; 2 – a_2 = 11,25 нм;
3 – a_2 = 11,55 нм. На рис. б: a_1 = 9 нм; a_2 = 10,99 нм; 1 – U_0 = 1,10; 2 – U_0 = 1,12; 3 – U_0 = 1,14

Пусть для определенности материалы эмиттера и коллектора совпадают (массивы циркониевых кластеров), при этом $\mu_1 = \mu_2$. Если в отсутствие напряжения уровень E_n лежит выше уровня Ферми эмиттера, то минимальное напряжение, при котором возможно туннелирование, определяется условием $E_n - eV_1 = m_1$, а максимальное напряжение – условием $E_n - \ - eV_1 = 0$. Таким образом, туннелирование через уровень E_n дает вклад в ток в интервале напряжений

$$\frac{(E_n - m_1)}{e} \frac{(a_1 + a_2)}{a_1} < V < \frac{E_n}{e} \frac{(a_1 + a_2)}{a_1}. \tag{4}$$

Чем выше уровень E_n, тем выше границы интервала, в котором возможно туннелирование через этот уровень.

Если же в отсутствие напряжения уровень E_n лежит ниже уровня Ферми эмиттера, то минимальное и максимальное напряжения, при которых возможно туннелирование через

данный уровень, определяются соответственно условиями $E_n - eV_1 = m_1 - eV$ и $E_n - eV_1 = 0$. Следовательно, туннелирование через E_n возможно в интервале напряжений

$$\frac{(m_1 - E_n)}{e}\frac{(a_1 + a_2)}{a_2} < V < \frac{E_n}{e}\frac{(a_1 + a_2)}{a_1}. \quad (5)$$

Чем ниже уровень E_n, тем выше нижняя граница интервала (5) и ниже его верхняя граница. Это означает, что при близких значениях a_1 и a_2 примерно половина уровней, лежащих ниже уровня Ферми эмиттера, не участвует в процессе туннелирования электронов.

Полный ток через структуру равен сумме парциальных токов I_n. Как показывают расчеты, относительное положение пиков парциальных токов зависит от высоты и соотношения ширины барьеров. На рис. 4а, б изображены парциальные токи через два уровня кластера и суммарный ток через эти уровни соответственно. Расчеты выполнены для двух ближайших уровней энергии над и под уровнем Ферми со значениями безразмерных энергий 1,01 и 0,985 соответственно, поскольку именно они дают наибольший вклад в вольт-амперную характеристику. При расчетах принято, что $t_n = t_{n-1}$. При этом нормирующий ток I_0 одинаков для обоих уровней. На вольт-амперной характеристике рис. 4б видна ступенька, получившаяся в результате сложения токов от разных уровней. Это говорит о том, что наличие ступенчатых вольт-амперных характеристик структур с нанокластерами может быть обусловлено не только кулоновской блокадой (которую мы не учитывали), но и резонансным туннелированием.

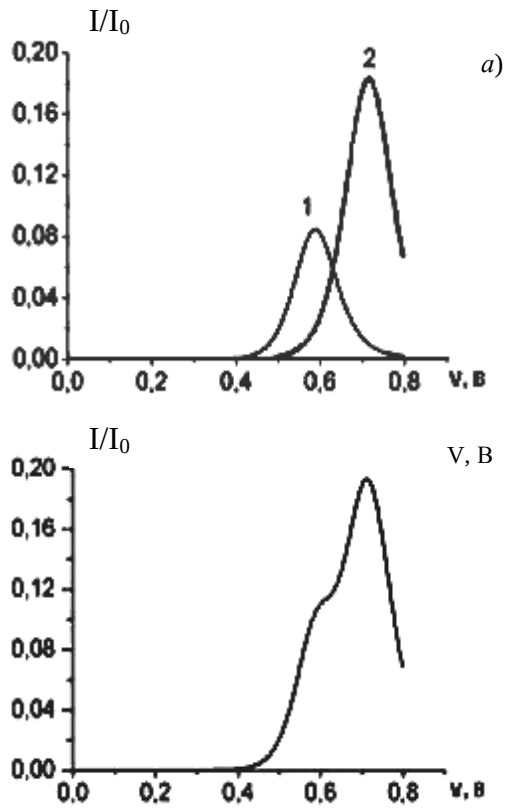


Рис. 4. Парциальные токи от двух бл к уровню Ферми уровней кластера (а) и по от этих энергетических уровней (б). m_1 = = 6,7 эВ; U_0 = 1,12 к единицах m_1; ширина барьера эмиттер – кластер a_1 = = 9 нм, барьера кластер – коллектор a_2 = 10,99 нм; расстояние между уровнями кластера ΔE = 0,2 эВ. 1 – пик от ближайшего сверху к уровню Ферми энергетического уровня E_n = 1,01; 2 – пик от уровня E_{n-1} = 0,985 – ближайшего к уровню Ферми снизу. Оба значения энергии в единицах m_1 (а)

Сравнение расчета с экспериментом

Зависимость полного тока от напряжения меняет вид при изменении параметра ΔE – среднего расстояния между энергетическими уровнями электрона в кластере. Изменяя этот параметр и добиваясь наибольшего согласия между экспериментальной и расчетной кривыми, можно оценить параметр ΔE.

На рис. 5 показаны вольт-амперные характеристики, рассчитанные для двух разных значений ΔE (0,4 и 0,7 эВ) при прочих равных параметрах. Расчетная характеристика с одним пиком получается не только при ΔE =0,7 эВ, но и при других значениях ΔE в интервале от 0,65 до 1,2 эВ. Пик,

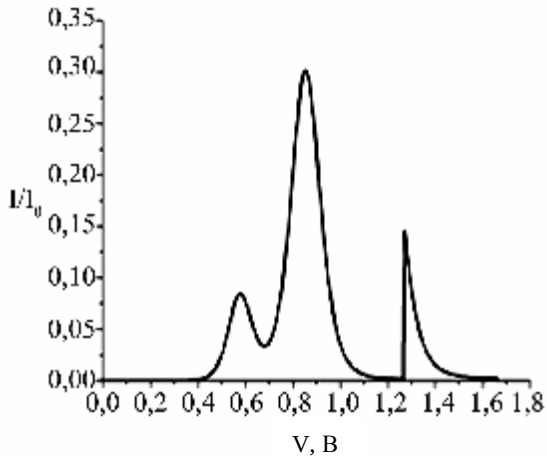


Рис. 5а. Туннельный ток при расстоянии между уровнями кластера ΔE = 0,4 эВ. Туннелирование идет через 2 ближайших уровня под уровнем Ферми и 1 ближайший уровень над уровнем Ферми. m_1 = = 6,7 эВ; U_0/m_1 = 1,12; a_1 = 9 нм; a_2 = 10,99 нм; $\mathbf{£}/t_n$ = = $10^{-3}m_1$

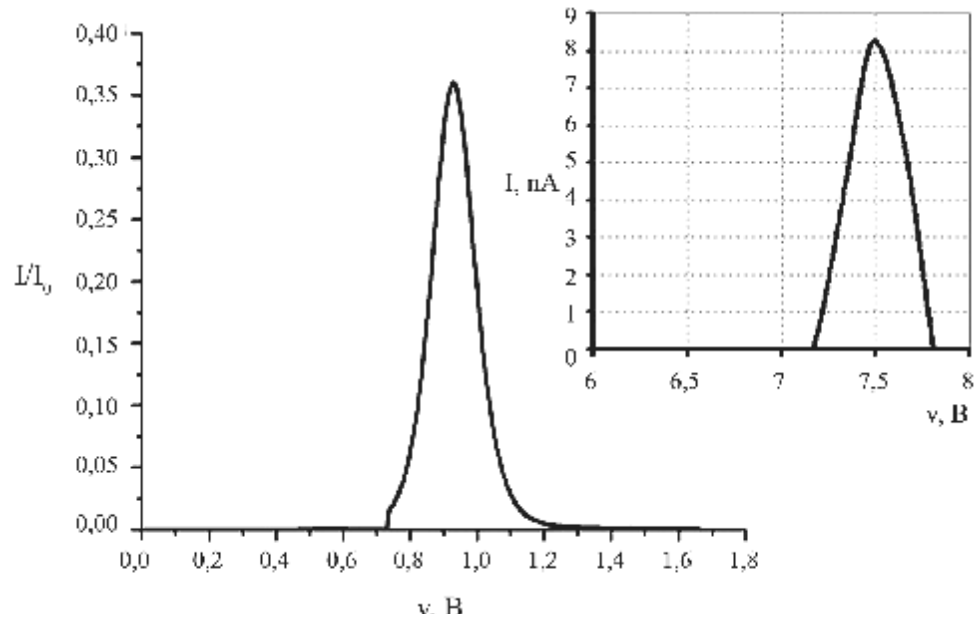


Рис. 5б. Туннельный ток при расстоянии меж[illegible]ми кластера ΔE = 0,7 эВ. Туннелирование идет через 1 ближайший уровень под уровнем Ферми. m_1 = 6,7 эВ; U_0/m_1 = 1,12; a_1 = 9 нм; a_2 = 10,99 нм; $\pounds/t_n = 10^{-3}m_1$

изображенный на вставке рис. 5б, получен путем вычитания фона из вольт-амперной характеристики рис. 1. Видно, что экспериментальный и расчетный пики близки по форме и ширине. Заметим, что ширина обоих максимумов гораздо меньше, чем уровень Ферми эмиттера (деленный на заряд электрона), что обусловлено учтенной зависимостью прозрачности барьеров от энергии электрона и напряжения на структуре.

Видно, что экспериментальный пик наблюдается при значительно большем напряжении чем расчетный пик. Такое расхождение обусловлено учетом падения напряжения только на «узком горле», которое составляет незначительную долю общего напряжения, падающего на структуре. Сравнение экспериментальной вольт-амперной характеристики (рис. 1) с амперную характеристику на рис. 1, лежит в интервале от 0,65 до 1,2 эВ.

Зная среднее расстояние между уровнями, можно оценить число электронов в кластере $N \approx 2m_1/\Delta E$. С другой стороны, его можно выразить через плотность циркония ρ, радиус кластера R и массу атома циркония m_{Zr}: $N = 16pR^3 r / 3m_{Zr}$ (принимаем, что каждый атом циркония отдает четыре электрона). Таким образом, можно оценить радиус кластера, играющего роль «узкого горла», по формуле

$$R \approx \sqrt[3]{3m_1 m_{Zr}/8pr\Delta E}\,. \qquad (6)$$

Полагая r = 6,5 г/см^3, m_{Zr} =91а.е.м., m_1= = 6,7 эВ, ΔE ≈ 0,7 эВ, получим, что экспериментальная кривая на рис. 1 соответствует туннелированию через кластер с радиусом R ≈ 0,3 нм.

Работа была выполнена при поддержке совместной Российско-Американской программы «Фундаментальные исследования и высшее образование» (BRHE), проект REC-001 и Министерства образования и науки Российской Федерации (гранты РНП № 2.1.1.6055, 2.1.1.4737, 2.1.1.4022).

Список литературы

1. Cattaruzza, E. // Phil. Mag. B. / E. Cattaruzza, G. Battaglin, F. Gonella. – 2002. – V. 76. – P. 615.
2. Cerofolini, G.F. // Microelectr. Eng. / G.F. Cerofolini, G. Arena, M. Camalleri. – 2005. – V. 81. – P. 405.
3. Демиховский, В.Я.Физика квантовых низкоразмерных структур / В.Я. Демиховский, Г.А. Вугальтер. – М.: Логос, 2000. – 247 с.
4. Горшков, О.Н. // Высокочистые вещества / О.Н. Горшков, Т.А. Грачева, А.П. Касаткин, Н.Д. Малыгин, В.А. Новиков, А.Ф. Щуров. – 1995. – № 2. – С. 85–93.
5. Горшков, О.Н. // Поверхность / О.Н. Горшков, Т.А. Грачева, А.П. Касаткин, Н.Д. Малыгин, В.А. Новиков, А.Ф. Щуров. – 1997. – № 1. – С. 15–19.
6. Осташев, А.С. // Известия РАН. Сер. Физика / А.С. Осташев, О.Н. Горшков, А.П. Касаткин, В.А. Новиков. – 2002. – Т. 66, № 9. – С. 1374–1376.
7. Горшков, О.Н. // Письма в ЖТФ / О.Н. Горшков, В.А. Новиков, А.П. Касаткин. – 1999. – Т. 25. – Вып. 14. – С. 72–75.
8. Горшков, О.Н. // Неорганические материалы / О.Н. Горшков, В.А. Новиков, А.П. Касаткин. – 1999. – Т. 35, № 5. – С. 604–610.

9. Antonov, D.A. // Physics of low – dimensional structures / D.A. Antonov, O.N. Gorshkov, A.P. Kasatkin, G.A. Maximov, D.A. Saveliev, D.O. Filatov. – 2004. – № 1/2. – P. 139.

10. Averin, D.V. // Phys. Rev. B / D.V. Averin, A.N. Korotkov, K.K. Likharev. – 1991. – V. 44. – P. 6199.

11. Ефремов, М.Д. // ФТП / М.Д. Ефремов, Г.Н. Камаев, В.А, Володин и др. – 2005. – V. 39. – P. 945.

12. Imamura, H. // Phys. Rev. B / H. Imamura, J. Chiba, i S. Mitan, et al. – 2000. – V. 61. – P. 46.

ELECTRON RESONANT TUNNELING THROUGH THE NANOCLUSTERS FORMED IN THE YTTRIA STABILIZED ZIRCONIA BY THE ION IMPLANTATION METHOD

D.A. Antonov, G.A. Vugalter, O.N. Gorshkov, A.P. Kasatkin, D.O. Filatov, M.E. Shenina

We study structures containing the nanoclusters formed in the yttria stabilized zirconia by the ion implantation method. The current–voltage characteristics of these structures are measured. The peaks seen in some of these characteristics are explained by the electron resonant tunneling with allowance for the structure voltage and the dependence of the dielectric-barrier transparency on the electron energy.